

初期3mm降水からみた甲府と大月の雨について

清水源治 高橋照美 中山 昭

現在、酸性雨現象を解明する目的で各地で広域的かつ継続的に調査が進められている。これまでに、降水に含まれる NH_4^+ , Ca^{2+} , NO_3^- , SO_4^{2-} の4物質が雨水のpHを決める重要な因子になっていること、また大気が汚染されている時よりむしろ清浄な時にpHが下がりやすいことなどが明らかにされている^{1~6)}。さらに気象状況や地域特性についても調査は継続されている。

本県では昭和48年に県東部で酸性雨の被害があり、以来降水成分の調査を行ってきた^{7~9)}。また56年からは一都七県(現在一都十県一市)で組織する湿性大気汚染調査グループに参加しており、甲府および大月の2地点で調査を行っている。そこで本報では両地点におけるこれまでの調査結果から降水成分の差異について検討した。

調査方法

甲府および大月の位置を図1に示した。両地点間は三ツ峠(1,786m)―大菩薩峠(2,056m)を結ぶ分水嶺でさえぎられており、直線距離は36kmである。調査地点には甲府は当所東庭(甲府市富士見一丁目)、大月は大月保健所屋上(大月市大月町花咲)を選んだ。調査期間は湿性大気汚染調査グループ⁹⁾で定めた6月中旬~7月初旬までの2週間にあわせ、甲府は56~59年度、大月は57~59年度とした。

雨水は初期降水から3mm目まで1mm降雨ごとに採取してpHなど10項目について測定した。なおpH、ECの測定はpH計、EC計を用いて行い、 Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} は原子吸光光度法(炎光光度法)、 NO_3^- はサリチル酸ナトリウム法、 SO_4^{2-} はグリセリン-アルコール

法、 Cl^- はチオシアン酸第二水銀法を用いた¹⁰⁾。また降水成分の濃度は対数正規分布に近似する⁴⁾ことが知られており、本報でも特に断わらない限り測定値は対数に変換して処理した。

結果と考察

酸性雨の発生には気象条件が強く関係している。本県のこれまでの調査^{10~12)}では、甲府における酸性雨の発生には南風が誘因になることが明らかになっている。雨水のpH低下は関東平野で北東の地上風が吹き静岡―山梨上空で南風が吹いた場合最も顕著で、51年に調査を開始して以来この気象条件下で酸性雨を記録した例が最も多い。この条件下では関東南部からの汚染物質の割合が多いとされている。また他の気象条件では低層の南風によって駿河湾方面の汚染物質だけが移送されて酸性雨となった例も報告されている。他方、大月では汚染物質は相模湾方面から南西風、南東風によって東側から流入することが多い。したがってそれぞれ別地域からの汚染物質によって雨水の酸性化が起こると仮定すれば、甲府と大月とではpHの変化の要因が異なる可能性が大きい。

初期1mm降水の各成分の平均値を表1に示したが、両地点間でpHに有意義が生じた(危険率1%)。雨水のpHを変化させる原因物質を推定する方法としては H^+ と他の成分との相関係数を用いる方法^{1~3)}や H^+ を目的変量とした重回帰分析を行う方法⁵⁾がある。これらの解析結果ではpHを低下させる物質として NO_3^- , SO_4^{2-} が、逆にpHを上昇させる物質として NH_4^+ , Ca^{2+} があげられることが多い。甲府と大月を比較すると NH_4^+ , NO_3^- , SO_4^{2-} の濃度は大月で高い傾向にあり、 Ca^{2+} は甲府で高くなる傾向があった。初期降水では雲内におけるレインアウト以外にウォッシュアウトによる雲層下の汚染物質の取り込みがあって¹³⁾、地上付近の局地的な汚染状況を反映することも多いと考えられる。地上付近の汚染物質濃度は両地点とも常時監視されているが NO_x , SO_x 、浮遊ふんじんの6月の算術平均値(56~58年)は甲府11ppb, 6ppb, 25 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 大月22ppb, 6ppb, 38 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で大月の NO_x が高い。 NO_x , SO_x の雨水の酸性化に及ぼす役割はまだ明確になっていないが¹⁴⁾, NO_x , SO_x 濃度が降水時に変化するとの報告例^{15,16)}も

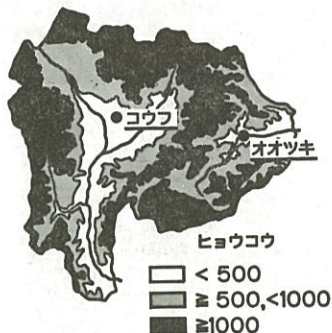


図1 調査地点

あり大月では甲府以上に NOx が取り込まれた可能性がある。また粉じん濃度も大月が高かったが、調査期間中あわせて行った降下ばいじん量の算術平均値（57～58年度）は甲府 380 mg/m²・日、大月 100 mg/m²・日と甲府が高い値となった。また降下ばいじん中の Ca は同じく 6.7 mg/m²・日、4.6 mg/m²・日と甲府が高かった。粉じん、ばいじん中には Ca が高濃度で含まれるが¹⁷⁾、この化学形は明らかではない。しかし雨水の酸性化は粉じん、ばいじんの量が少ない場合におきること²⁾、また粉じん、ばいじんは初期降水で除去されやすく粉じん汚染の進んだ地点では 1 mm 目より 2 mm 目の pH が低くなる傾向のあること¹⁰⁾などから甲府—大月の pH の差には NOx の他に粉じん、ばいじんも影響をおよぼしていると考えられた。また雨量強度が小さいほど雨水の pH が低下する傾向の強い²⁾ことも知られている。調査期間中、大月では 20 の測定例のうち 14 例は雨量強度が小さかったと考えられ、甲府の 22 例中 3 例より多い。大月の pH 低下の原因としてこの気象条件が重なったこともあげられよう。なお、現在までに報告された測定例からわ

が国における pH 分布は 4.0～4.5 が最も多く次いで 4.6～5.0 になるとされている¹⁴⁾。したがって甲府 4.67、大月 4.13 の pH には有意差はあるものごとく一般的な性状であるといえる。

一般に降水成分の濃度は初期降雨 1 mm 目が最も高く、2 mm 目以降は急速に減少する。本調査では 3 mm 目まで分取したが（表 2）、この傾向ははっきりしている。なお 3 mm に満たない降雨はこの表から除外した。松本ら⁵⁾は 5 mm 目までの雨水はウォッシュアウトの影響を受けると報告しているが、現在までのところウォッシュアウトによる降水成分の降下量を算出した例はない。また降水成分の減少率を数値化した例⁵⁾も少ない。牧野ら⁴⁾は降水成分の濃度変化を $y=a/x+b$ (x : 降水量, y : 濃度) で近似している。ここで、 b の値は降水量が無限大になった時の濃度のバックグランド値、 a は一降水ごとに大気中から除去される物質質量として意味づけたが、この式では濃度の減少速度を知ることができない。そこで著者らは減少の速度を知る目的で降水成分の濃度変化を、分取した x mm 目ごと (0.5, 1.5, 2.5 mm) の濃度を y として

$$y=ae^{-bx}+c \quad (a, b, c: \text{定数})$$

で近似した。ここで c の値は降水量が無限大になった時に分取した濃度すなわちレインアウトだけで説明できる濃度として意味づけた。また上式で $Y=\log(y-c)$ とおけば減少の速度は $-dY/dx=b$ となり b の値が大きいくほど減少速度は著しいことになる。さらに一降水におけるウォッシュアウトによる降下量 A を次式によって求めた。

$$A = \int_0^{\infty} \{(ae^{-bx}+c)-c\} dx = a/b$$

各降水成分 1～3 mm までの平均値から求めた a, b, c, A の値を表 2 に示した。図 2 に甲府と大月の EC の変化を示したが、大月では初期濃度 ($a+c$) は大きい甲府以上に急速に小さくなる (b)。またレインアウトによる値 (c) は甲府がやや大きいウォッシュアウトによる降

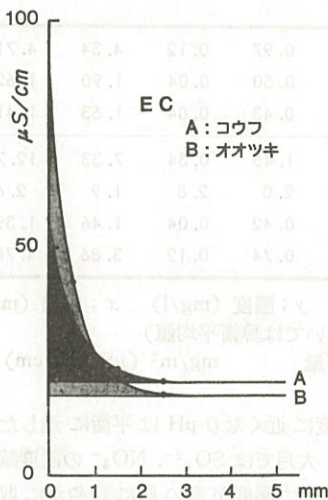


図 2 3 mm 目までの EC の変化

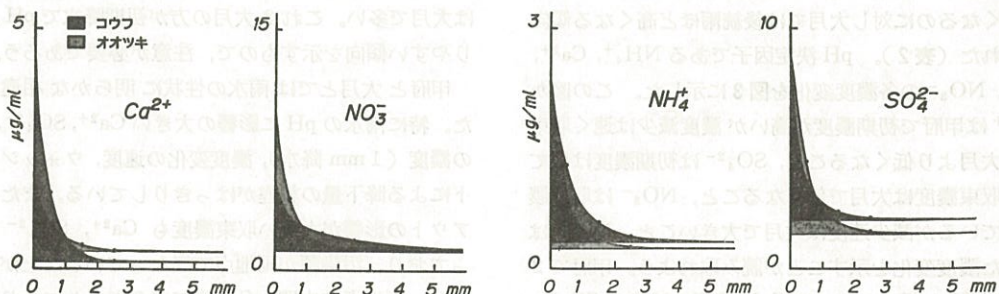


図 3 3 mm 目までの各成分の濃度変化

表1 甲府市および大月市の初期1mmの降水成分の概要 昭和56年~59年

	N	pH	EC	NH ₄	Na	K	Ca	Mg	SO ₄	NO ₃	Cl	
甲府市	Av	22	4.67	35.1	1.11	0.33	0.34	1.56	0.14	3.38	3.46	1.07
	SD		0.59	1.73	2.28	2.24	1.40	1.27	1.51	2.50	2.00	1.68
大月市	Av	20	4.13	58.9	1.48	0.58	0.42	1.09	0.16	6.35	7.97	2.67
	SD		0.61	3.22	3.21	2.98	4.56	3.97	2.44	5.05	2.83	2.74

単位 μg/ml (EC μS/cm) Av; 平均値 SD; 標準偏差 分布 Av×SD⁺¹ (pH Av±SD)

表2 甲府市および大月市の降水成分の概要 昭和56年~59年

	pH	EC	NH ₄	Na	K	Ca	Mg	SO ₄	NO ₃	Cl
Av (0-1mm)	4.68	34.7	1.30	0.31	0.31	1.50	0.13	3.52	3.24	1.07
甲府市 Av (1-2mm)	4.60	23.1	0.57	0.16	0.12	0.27	0.04	2.16	2.38	0.42
Av (2-3mm)	4.73	21.1	0.39	0.13	0.09	0.18	0.03	2.04	1.91	0.39
a		33.3	1.95	0.36	0.53	4.84	0.36	5.03	4.82	3.41
b		1.7	1.4	1.3	1.7	2.5	2.3	2.4	1.8	3.2
c		20.7	0.33	0.11	0.08	0.17	0.02	2.03	1.30	0.39
A		19.4	1.41	0.28	0.32	1.92	0.16	2.09	2.63	1.06
Av (0-1mm)	4.53	44.4	0.96	0.38	0.15	0.97	0.12	4.34	4.71	1.26
大月市 Av (1-2mm)	4.98	21.1	0.35	0.20	0.09	0.50	0.04	1.90	1.62	0.78
Av (2-3mm)	5.26	17.8	0.28	0.16	0.09	0.43	0.04	1.53	1.41	0.77
a		72.1	1.98	0.50	0.24	1.45	0.34	7.33	12.7	2.71
b		2.0	2.1	1.5	2.8	2.0	2.8	1.9	2.6	3.5
c		17.3	0.27	0.15	0.09	0.42	0.04	1.46	1.39	0.76
A		36.7	0.93	0.34	0.09	0.74	0.12	3.86	4.78	0.77

a, b, c; $y = ae^{-bx} + c$ y; 濃度 (mg/l) x; 雨量 (mm)
 Av; 幾何平均値 (pH については算術平均値)
 A; Wash out による降下量 mg/m² (μS mm/cm)

下量 (A, a/b) は大月の方が大きいことがわかる。したがってこの a, b, c 3 個の値で初期濃度 (0 mm 降雨濃度), 減少速度, 収束濃度 (レインアウト濃度), ウォッシュアウト降下量を表わすことが可能であり, 各降水成分による地域特性が明らかになると考えられる。

調査期間中の pH の算術平均値は甲府では 2 mm 目が最も低くなるのに対し大月では後続雨ほど高くなる傾向がみられた (表 2)。pH 決定因子である NH₄⁺, Ca²⁺, SO₄²⁻, NO₃⁻ の各濃度変化を図 3 に示した。この図から Ca²⁺ は甲府で初期濃度が高いが濃度減少は速く収束濃度は大月より低くなること, SO₄²⁻ は初期濃度は似ているが収束濃度は大月で低くなること, NO₃⁻ は収束濃度は似ているが減少速度は大月で大きいこと, NH₄⁺ はよく似た濃度変化を示すことが読み取れよう。甲府で 2 mm 目の pH が低くなるのは Ca²⁺ 濃度の減少が SO₄²⁻, NO₃⁻ の減少を上回るためで 3 mm 目以降は 3 成分と

も収束濃度に近くなり pH は平衡に達したと考えられる。他方, 大月では SO₄²⁻, NO₃⁻ の濃度減少が著しいのに対し Ca²⁺ 濃度が高い値に緩やかに収束するため pH は徐々に上昇し甲府より高い値で平衡に達すると考えられた。なおウォッシュアウト降下量は NH₄⁺, Ca²⁺ が甲府で多いのに対し, pH 低下因子である SO₄²⁻, NO₃⁻ は大月で多い。これは大月の方が初期降水で pH が下がりやすい傾向を示すもので, 注意が必要であろう。

甲府と大月とでは雨水の性状に明らかな相違があった。特に雨水の pH に影響の大きい Ca²⁺, SO₄²⁻, NO₃⁻ の濃度 (1 mm 降水), 濃度変化の速度, ウォッシュアウトによる降下量の相違がはっきりしている。またレインアウトの影響が大きい収束濃度も Ca²⁺, SO₄²⁻ と異なっており, 汚染源が両地点で異なっていることが考えられた。両地点は中間を分水嶺でさえぎられており風向や雨量も異なることが多い。汚染物質の発生源の大きさや

他地域からの移入経路も異なっている。したがって今後両地点における調査値の他に近県の調査値と照らし合わせて甲府、大月の地域特性を明らかにしていきたい。

ま と め

甲府と大月の降水成分の差異を知るために pH など10項目の測定を行い、比較した。その結果次の点が明らかになった。

1. 初期1mm降水のpH平均値は甲府4.67, 大月4.13であり、有意差があった。この原因としては甲府の Ca^{2+} , 大月の SO_4^{2-} , NO_3^- の濃度が高いためと考えられた。

2. 1mmごとに3mm目まで分取して得た測定値を、 x mm目ごとの濃度を y として

$$y = ae^{-bx} + c \quad (a, b, c; \text{定数})$$

で近似した。ここで c をレインアウト濃度、 b を減少速度、 $a+c$ を初期濃度として意味づけた。またウォッシュアウト降下量 A を次式から算出した。

$$A = \int_0^{\infty} [(ae^{-bx} + c) - c] dx = a/b$$

3. b および c の値により、甲府の2mm目のpHが低いこと、また大月では後続雨ほどpHが高くなることが説明できた。

4. c の値は SO_4^{2-} については甲府が、 Ca^{2+} , Cl^- については大月が大きく、汚染の発生源や汚染経路が両地点では異なる可能性が示唆された。

5. 大月の SO_4^{2-} , NO_3^- のウォッシュアウト降下量は大きく、初期降水でpHが下がりやすい傾向がうかがわれた。

なお本調査で、雨水の採取、pHの測定にご協力をいただいた大月保健所衛生課のみなさまに感謝いたします。また、ご指導いただいた関東地方公害対策推進本部大気汚染部会湿性大気汚染調査グループの諸兄に感謝いたします。

文 献

- 1) 水上和子, 金子安夫: 埼玉県公害センター年報 5, 60~65 (1978)
- 2) 正道寛治ら: 福井県公害センター年報 7, 135~154 (1977)
- 3) 薩摩林光, 佐々木一敏: 長野県衛生公害研究所報告 1, 59~65 (1979)
- 4) 牧野 宏, 才木義夫, 野島秀子: 全国公害研会誌 1 (2), 13~17 (1983)
- 5) 松本光弘, 板野龍光: 大気汚染学会誌 20 (1), 12~22 (1985)
- 6) 関東地方公害対策推進本部大気汚染部会: 昭和56, 57年度湿性大気汚染調査報告書 (昭和58年)
- 7) 鷹野茂夫, 沼田 一: 本誌 18, 80~85 (1974)
- 8) 鷹野茂夫, 中山 昭: 第10回山梨県公衆衛生研究発表会 (1975)
- 9) 中山 昭, 鷹野茂夫: 第11回山梨県公衆衛生研究発表会 (1976)
- 10) 山梨県, 日本気象協会: 山梨県における湿性大気汚染いわゆる“酸性雨”に関する調査報告 (1976)
- 11) 山梨県, 日本気象協会: 山梨県における酸性雨予報業務52~54年の総合報告書 (1980)
- 12) 山梨県, 日本気象協会: 山梨県における光化学スモッグ予報業務の概要 (1981~1984)
- 13) 大喜多敏一: 公害と対策 20 (10), 79~84 (1984)
- 14) 玉置元則: 環境技術 14 (2), 2~10 (1985)
- 15) 北村洋子: 宮城県公害技術センター報告 8, 40~64 (1979)
- 16) 玉置元則, 平木隆平, 渡辺 弘: 兵庫県公害研究所研究報告 11, 1~11 (1979)
- 17) 松本 寛, 加藤拓紀, 井高 一: 北海道公害防止研究所報 10, 48~62 (1983)
- 18) 小山 初ら: 東京都公害研究所年報 (1983)
- 19) 環境庁大気保全局: 酸性雨成分分析調査実施細則 (各年度)